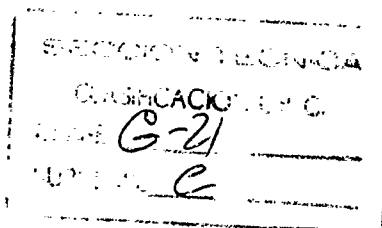


368454



368454

## memoria descriptiva



CLASE DE  
REGISTRO

PATENTE DE INVENCION, por veinte años en España

NOMBRE Y  
NACIONA-  
LIDAD DEL  
SOLICITANTE

GENERAL ELECTRIC COMPANY  
- sociedad norteamericana -

RESIDENCIA  
Y DOMICILIO

New York, N.Y. 10016 (EE.UU.)  
159 Madison Avenue

OBJETO

" PROCEDIMIENTO DE RECUPERACION DE COMBUSTIBLE NUCLEAR IRRADIADO "

PRIORIDAD:

Solicitud patente U.S.A. Serial No. 738.009 del día 18 de Junio de 1968.

INVENTOR:

D. Marx Elson Weech; de nacionalidad norteamericana.



360454

1                   Las reacciones de fisión nuclear en cadena y los reac-  
tores, en que tienen lugar, son ahora bien conocidos. Un reac-  
tor nuclear típico incluye un conjunto o núcleo de reacción en  
5                   cadena consistente en material de combustible nuclear, conte-  
nido en elementos de combustible. El material de combustible es  
tá generalmente embutido en una carcasa o revestimiento conduc-  
tor de calor, resistente a la corrosión. El núcleo del reactor,  
compuesto de una pluralidad de estos elementos en relación es-  
10                   paciada, está encerrado en un recipiente, a través del que flu-  
ye el refrigerante del reactor. Cuando el refrigerante pasa en-  
tre los elementos de combustible espaciados, se calienta por  
la energía térmica, liberada durante la reacción de fisión. El  
refrigerante calentado, entonces abandona el reactor, la ener-  
15                   gía térmica es usada para ejecutar trabajo útil, tal como pro-  
pulsando una turbina, y el refrigerante, ahora enfriado, es de-  
vuelto al ciclo del reactor.

                  El material de combustible nuclear contiene átomos  
fisionables tales como U-235, U-235, Pu-239 y Pu-241. El com-  
20                   bustible puede estar en forma elemental o compuesta. Cuando -  
los núcleos de tal átomo absorben un neutrón, ocurre frecuentemente  
una fisión nuclear. Esto produce, como promedio, dos áto-  
mos de producto de fisión de menor peso atómico, varios neutro-  
nes de alta energía y una gran cantidad de energía cinética.  
25                   La energía cinética de los productos de fisión y neutrones de  
fisión se disipa rápidamente, produciendo calor. En tanto que,  
por lo menos un neutrón de cada acontecimiento de fisión, in-  
duzca un acontecimiento subsiguiente de fisión, la reacción de

30



39454

1 fisión es auto-sostenida. Los átomos fisionables son así gra-  
dualmente consumidos. Algunos de los productos de fisión produ-  
cidos son fuertes absorbentes de neutrones (tóxicos de neutro-  
5 nes) que absorben neutrones que, de otro modo, contribuirían a  
la reacción en cadena. La reacción de fisión, por lo tanto, -  
tiende a disminuir y no puede mantenerse indefinidamente a un  
nivel dado.

10 En algunos reactores nucleares, pueden incluirse en  
los elementos de combustible materiales fértiles, tales como  
U-238, adicionalmente al material fisionable. Durante la reac-  
ción de fisión, el material fértil, por ejemplo U-238, es irra-  
diado con neutrones, que convierten parte del U-238 en el isó-  
topo fisionable Pu-239. La concentración de Pu-239 en el com-  
15 bustible aumenta gradualmente con la irradiación y alcanza un  
valor de equilibrio. Los átomos de Pu-239 se fisionan similar-  
mente al combustible original de U-235, contribuyendo así al  
mantenimiento de la reacción en cadena.

20 Excepto en el tipo de reactor del tipo de criador-con-  
vertidor, la cantidad de material fisionable, creado por con-  
versión de átomo fértil, es siempre menor que el régimen, al  
que se consume la cantidad original de átomo fisionable. Por  
último, el nivel de energía operativa del reactor disminuye al  
punto, en que el reactor tiene que ser cerrado para repostar -  
25 combustible. Por lo menos una fracción adecuada del combustible  
irradiado es sacada y remplazada con nuevo combustible, tenien-  
do la concentración deseada de átomos fisionables y ninguna cla-  
se de tóxicos de neutrones de producto de fisión. La reactivi-



360454

1 dad del núcleo reabastecido de combustible es así incrementada a la extensión necesaria, de modo que el nivel de energía deseado puede ser mantenido.

5 El combustible de reactor irradiado, sacado del reactor, contiene una cantidad valiosa del material fisionable original. En adición, el combustible irradiado contiene una cantidad significativa de material fértil, y de material fisionable convertido de material fértil. Además, ciertos productos de fisión y/o isótopos transuránicos de considerable valor pueden estar contenidos en el combustible. Por lo tanto, es altamente deseable que el material de combustible irradiado sea elaborado de nuevo para recuperar y separar estos materiales para nuevo uso. El combustible y materiales fértiles separados para nuevo uso tienen que estar suficientemente libres de productos de fisión altamente radiactivos para permitir manipulación directa. Se requiere la separación de producto de fisión o "descontaminación" suficiente para reducir la radiactividad original al orden de  $10^{-7}$  a  $10^{-8}$  de su valor original. Un "factor de descontaminación" de  $10^6$ , por ejemplo, indica que la radiactividad original ha sido reducida por un factor de  $10^6$  en el proceso de descontaminación.

15  
20  
25 Un sistema de recuperación de combustible irradiado utilizado corrientemente ha sido denominado como procedimiento "Purex". Este procedimiento está corrientemente en uso en la elaboración química de combustible de reactores de producción de plutonio. El procedimiento Purex utiliza un disolvente orgánico, consistente en tributíl-fosfato, diluido con que

17 JUN 1959



368454

- 4 -

1 roseno para extraer el uranio y plutonio selectivamente de una  
solución de ácido nítrico de combustible irradiado. El procedi-  
miento usa ácido nítrico como agente "salador", en que concen-  
traciones moderadas hacen que se extraiga el uranio y plutonio  
5 dentro del disolvente orgánico, mientras que concentraciones  
más bajas permiten que los elementos retornen a la fase acuosa.  
El procedimiento Purex usa dos o tres ciclos separados de tal  
extracción y despojamiento sobre el uranio y plutonio, consis-  
tiendo cada ciclo en una transferencia del uranio y/o plutonio,  
10 desde la fase acuosa a la fase orgánica y volviendo a una fase  
acuosa.

El procedimiento Purex tiene un número de desventa-  
jas inherentes. Existe una cantidad sustancial de equipo dupli-  
cado, en vista de que se requieren dos o tres ciclos completos  
15 de disolvente para producir productos de uranio y plutonio su-  
ficientemente descontaminados. Se produce un gran volumen de  
materiales radiactivos de desperdicio, debido a la necesidad  
de tratar el disolvente orgánico con varios reactivos químicos  
para eliminar los productos de degradación antes de devolver-  
se al ciclo el disolvente. Esta degradación de disolvente or-  
gánico se hace bastante rápida en el campo de radiación, crea-  
do por los productos de fisión, y afecta adversamente a las  
capacidades de elaboración. Grandes cantidades de calor se con-  
sumen en evaporación de líquido, que se requiere en la concen-  
20 tración de corrientes entre los distintos ciclos de extracción  
de disolvente.

La separación de uranio de plutonio en el procedi-

30

30-454

1 miento Purex se realiza reduciendo el estado de valencia del  
Plutonio de cuatro a tres, usando reductores químicos, tales  
como hierro ferroso con un agente estabilizante, tal como hie-  
5 rro sulfámico. El uso de estos reductores y reactivos estabili-  
zantes es desventajoso, debido al coste de los productos quími-  
cos y al hecho de que estos reactivos incrementan el volumen  
de los residuos de desperdicio. Los costes de almacenaje y vi-  
gilancia de largo plazo de desperdicios radiactivos son muy al-  
10 tos.

Otro procedimiento de extracción de disolvente de nue-  
va elaboración de combustible irradiado se denomina procedimien-  
to Redox. El procedimiento Redox usa un agente salador no vo-  
15 látil y un disolvente volátil, en contraste con el disolvente  
no-volátil y agente salador volátil usado en el procedimiento  
Purex. En el procedimiento Redox, una solución de ácido nítrico  
de combustible irradiado es extraída con metilisobutil-cetona  
como disolvente orgánico. Este disolvente extrae el plutonio y  
20 uranio, dejando una solución acuosa de productos de fisión. Una  
solución acuosa de nitrato de aluminio se usa como agente sala-  
dor. El plutonio es separado de la fase orgánica en una fase  
acuosa y se extrae uranio de la fase orgánica con ácido nítri-  
co diluido. Ambas corrientes conteniendo uranio y plutonio, se  
25 someten a segundos ciclos de extracción de disolvente para me-  
jorar separación y descontaminación.

Aunque la recuperación de disolvente en el procedi-  
miento Redox se simplifica por su naturaleza volátil, se crean  
sustanciales volúmenes de desperdicio en la forma de soluciones

30



368454

1 del agente salador que no se recupera para nuevo uso. El equi-  
po es extenso y complejo, puesto que los deseados factores de  
descontaminación de producto de plutonio y uranio se consiguen  
5 sólo a través de tres ciclos de extracción de disolvente-agota-  
miento, con limpieza final de producto por medio de intercambio  
de iones y adsorción de sólidos.

Otros varios procedimientos para recuperar combusti-  
ble irradiado hans sido propuestos, usando refinación de fusión  
10 de combustibles metálicos y elaboración de sal fundida de otros  
combustibles. Sin embargo, estos procedimientos han exhibido -  
eficacia de descontaminación y recuperación mucho menor que los  
procedimientos Purex y Redox, además de requerir grandes canti-  
dades de calor y complejo equipo de alta temperatura.

15 De acuerdo con este invento, se procura un procedi-  
miento de recuperación de combustible nuclear irradiado, que  
utiliza una columna de reflujo de un ciclo de fases múltiples.  
En una ejecución de este procedimiento, el combustible irradia-  
do es primeramente disuelto en ácido nítrico. Esta solución es  
20 pasada a través de un primer contactor convencional de extrac-  
ción de disolvente de fase múltiple. Se extraen uranio, pluto-  
nio y neptunio de la corriente acuosa de ácido nítrico por una  
corriente de disolvente orgánico. Esta corriente pasa a una co-  
luna de reflujo, que es un segundo contactor convencional de  
25 extracción de fases múltiples. Una corriente de reflujo, conte-  
niendo uranio concentrado entra en la parte superior de la co-  
luna de reflujo para mantener el contenido de uranio del di-  
solvente mayor de 90% de saturación para ayudar al barrido de



330454

1 materiales distintos al uranio de la corriente. Una pequeña co-  
rriente de ácido entra en el centro de la columna de reflujo -  
para mantener la concentración de ácido a un valor, que permi-  
ta la extracción efectiva de uranio en la sección inferior de  
5 la columna mientras que no se extrae plutonio y neptunio. La  
corriente de producto de uranio, que sale de la columna de re-  
flujo, entra en un tercer contactor de extracción de fases múl-  
tiples, donde el uranio es despojado por una corriente acuosa.  
Parte de la corriente acuosa desde este contactor, conteniendo  
10 una alta concentración de uranio, se retorna, como corriente  
de reflujo, a la columna de reflujo. La corriente de producto  
de uranio puede ser concentrada en un evaporador, si se desea,  
antes de ulterior elaboración. La corriente, que contiene plu-  
tonio y neptunio, puede dirigirse a extracción por intercambio  
15 de aniones o a extracción adicional con disolvente para ulte-  
rior separación de plutonio, neptunio y productos de fisión,  
según se desee. Este sistema elimina el uso de reductores, ta-  
les como sulfamato ferroso, al separar plutonio y uranio, dis-  
minuyendo así el volumen de desperdicio y los costes de los -  
20 reactivos químicos.

La figura muestra una hoja de esquema de flujo sim-  
plificado para el procedimiento de recuperación de combustible  
mejorado de este invento, incluyendo un sistema único de reflu-  
jo.

25 El procedimiento aprovecha el hecho de que la efica-  
cia de la descontaminación es grandemente incrementada cuando  
la saturación de uranio del disolvente es muy alta. Este pro-



300454

1 cedimiento emplea un disolvente orgánico conteniendo desde al-  
rededor de 25 a alrededor de 40 por ciento de volumen de tri-  
butil-fosfato en un diluyente de hidrocarburo, tal como quero-  
5 seno o n-hexano. Cuando está saturado al 100%, este disolven-  
te contendrá alrededor de 120 gramos de uranio por litro. Cuan-  
do la saturación del disolvente es incrementada, las proporci-  
ones de distribución de plutonio y de productos de fisión dismi-  
nuyen. Entre los productos de fisión son de importancia prima-  
ria, circonio, niobio y rutenio, puesto que estos productos de  
10 fisión tienen las más altas proporciones de distribución. Los  
productos de fisión Zr-95, Nb-95 y Ru-103 y-106 son también mo-  
lestos, por su naturaleza anfotérica, y en el caso de rutenio,  
sus muchos estados de valencia. Estos factores hacen difícil  
predecir su conducta química en la operación de nueva elabora-  
15 ción química. Sin embargo, la proporción de distribución de es-  
tos productos de fisión se rebaja sustancialmente por la alta  
saturación de uranio del disolvente en la columna de reflujo.  
La proporción de distribución de neptunio está algo por debajo  
de la del plutonio y también se disminuye sustancialmente dis-  
minuyendo la concentración de uranio del disolvente.

Sería posible excelente descontaminación en el proce-  
dimiento Purex si fuera posible mantener la concentración de  
uranio del disolvente a un nivel muy alto. Sin embargo, la sa-  
25 turación tiene que mantenerse por debajo de ciertos límites,  
con el fin de extraer todo el plutonio y neptunio. Si la satu-  
ración es elevada por encima de este máximo, ocurrirán altas  
pérdidas de estos dos componentes desde la corriente de desper-

368454

17



- 9 -

1 dicio de la primera columna.

5 El tributil-fosfato en el disolvente se descompone, en una ligera extensión, por acción química y radiolítica, en fosfatos de dibutilo y monobutilo. Estos productos de descomposición forman compuestos muy estables con uranio, plutonio, circonio y niobio, que son ampliamente extraídos en la fase orgánica. Los compuestos de circonio y niobio, por consiguiente, reducen la descontaminación, que puede conseguirse en la columna y separación de plutonio y uranio, se hace más difícil.

10 En un intento de solucionar este problema, la saturación de disolvente en el procedimiento comercial Purex se mantiene por debajo de 80% de saturación en la primera fase de barrido y alrededor de 65% de saturación en las fases restantes. Así, algún tributil-fosfato no combinado está disponible para extraer los compuestos de producto de descomposición de tributil-fosfato/ion metálico, que limita la descontaminación que puede alcanzarse en un solo ciclo de extracción de agotamiento.

20 El procedimiento del presente invento, por otra parte, mantiene la saturación de disolvente por lo menos a 90% a través de la sección de barrido de la columna de reflujo. Simultáneamente, el ácido nítrico es eliminado efectivamente en las primeras fases de la sección de barrido de la columna de reflujo, que deja solo el uranio para combinarse con los productos de descomposición de tributil-fosfato. Como resultado, por acción de masa el uranio desplaza otros iones metálicos, que podrían combinarse con los productos de descomposición de

30

368454

17



- 10 -

1 tributil-fosfato, liberando este ión de metal para eliminación  
por barrido de contracorriente. Así, los factores de desconta-  
minación se acercan más próximamente a los valores predichos  
5 por las proporciones de distribución. Similarmente, las pérdi-  
das de plutonio y neptunio, como compuestos de productos de -  
descomposición de tributil-fosfato, se reducen sustancialmente  
por el mismo mecanismo de acción de masa.

10 Por lo tanto, se obtienen factores de descontamina-  
ción muy mejorados y recuperación mejorada de uranio, plutonio  
y neptunio en un sistema, que emplea una primera columna de ex-  
tracción por disolvente (como en el procedimiento Purex) de -  
una nueva manera con una columna de reflujo altamente eficaz.

15 Haciendo ahora referencia al dibujo, en el mismo se  
observa una hoja de flujo esquemático simplificado para el pro-  
cedimiento de este invento.

20 En dicho dibujo, las letras tienen el siguiente sig-  
nificado: A = solución de ácido nítrico; B = corriente de re-  
flujo; C = despojamiento acuoso; D = desperdicio orgánico; E =  
agua evaporada; F = solución acuosa de combustible irradiado;  
G = columna de extracción; H = primer producto; I = columna  
de reflujo; J = sección de barrido; K = sección de extracción;  
L = producto de reflujo; M = columna despojadora; N = vapor;  
O = solución de uranio de nuevo ciclo; P = condensado; Q = ura-  
nio concentrado de nuevo ciclo; R = producto de uranio; S =  
25 disolvente orgánico; T = desperdicio acuoso; U = producto de  
uranio - neptunio y V = ácido.

Una corriente de alimentación, comprendiendo combus-



368454

1 tible nuclear irradiado, disuelto en una solución de ácido nítrico, es bombeada dentro de una columna 10 de extracción de disolvente de fases múltiples a través de la tubería 11.

5 Una corriente de extracción comprendiendo tributilfosfato en un disolvente de hidrocarburo entra cerca del fondo de la columna 10 a través de la línea 12. Cualquier concentración adecuada de tributil fosfato de cualquier disolvente adecuado puede emplearse. Preferentemente, se utiliza desde alrededor de 25 a alrededor de 40 por ciento de volumen de tributil fosfato en un disolvente, tal como queroseno desodorizado o n-dodecano. Los mejores resultados se obtienen con alrededor de 30% de tributil-fosfato en n-dodecano, puesto que el hidrocarburo no disociado es altamente resistente a descomposición radiolítica.

15 Una corriente barredora, comprendiendo desde alrededor de 1.0 hasta alrededor de 4.0 molar de ácido nítrico acuoso, entra por la parte superior de la columna 10 a través de la tubería 13. Los mejores resultados se obtienen con ácido nítrico alrededor de 3 molar.

20 El uranio, plutonio y neptunio se extraen juntos de la corriente acuosa de alimentación y se barren por la corriente barredora acuosa de ácido nítrico, que produce descontaminación parcial. Una corriente de desperdicio, comprendiendo ácido nítrico acuoso y varios productos de fisión, abandona  
25 la columna 10 a través de la tubería 14. Esta corriente de desperdicio puede ser tratada, concentrada ulteriormente y finalmente almacenada en una instalación de entierro de desper-

308454

17



- 12 -

1 dicios.

5 La corriente de producto primero, desde la columna 10 sale a través de la tubería 15 y entra en la columna de reflujo 20. Esta primera corriente de producto pasa en contracorriente a la corriente de reflujo entrando a través de la tubería 21. La corriente de reflujo contiene suficiente uranio para elevar el contenido de uranio del disolvente a más de alrededor de 90% de saturación. A esta saturación, las proporciones de distribución de plutonio, neptunio, ácido nítrico y de los productos de fisión circonio, niobio y rutenio son muy bajas, de modo que estos componentes sean barridos de la primera corriente de producto, cuando pasa a través de la sección de barrido de la columna 20 de reflujo.

15 Una corriente despojadora, similar en composición a la corriente de extracción, arriba descrita, entra en la columna 20 de reflujo, a través de la tubería 22. Una pequeña corriente de ácido nítrico de alrededor de 7 hasta alrededor de 12 molar, entra en la columna 20 de reflujo a través de la línea 24 para llevar la acidez de la fase acuosa hasta alrededor de 1 molar. En esta acidez, el uranio es extraído por la corriente despojadora orgánica, mientras que plutonio, neptunio, ácido nítrico y productos de fisión, que son extraídos, se refluyen retrocediendo desde la sección barridora y abandonan la columna 20 de reflujo en una corriente de producto de plutonio-neptunio a través de la tubería 23. Esto evita pérdida de uranio en la corriente de producto de plutonio-neptunio.

25 La corriente de plutonio-neptunio puede ser dirigi-

30



360454

1 da hacia el intercambio de aniones o extracción adicional de disolvente para ulterior separación de plutonio-neptunio de - productos de fisión.

5 La corriente de producto de reflujo, que contiene sustancialmente sólo uranio y tributil-fosfato en el disolvente - orgánico, abandona la columna 20 de reflujo a través de la tubería 25 y entra en una tercera columna de extracción de disolvente de fases múltiples 30. Aquí, el uranio se despoja de la fase orgánica por una corriente acuosa, que entra a través de 10 la línea 31. Preferentemente, el despojamiento se efectúa a una temperatura en el alcance desde alrededor de 50 hasta alrededor de 60°C para permitir la mayor concentración posible de uranio. El disolvente orgánico, despojado de uranio, abandona 15 la columna 30 a través de la línea 32. La corriente conteniendo uranio acuoso abandona la columna 30 a través de la tubería 33 y se divide, pasando parte a través de la tubería 34 de renovación de ciclo para constituir la corriente de reflujo, y parte que pasa a través de la tubería 35 a un evaporador 40 de 20 producto de uranio, que puede ser un re-hervidor convencional de sifón.

La corriente de uranio acuoso concentrada abandona el evaporador 40 a través de la tubería 41 y se divide, yendo 25 parte al almacenaje de producto de uranio a través de la tubería 42, y pasando el resto a través de la línea 43 para ser mezclado con la corriente de renovación de ciclo desde la tubería 34, para constituir la corriente de reflujo, que se introduce en la columna 20 de reflujo a través de la tubería 21.

30



360454

1 El agua evaporada en el evaporador 40 se descarga a través de la tubería 44, puede desecharse o usarse de nuevo según se desee.

5 El evaporador 40 se calienta de una manera convencional por vapor, que entra en la sección 46 de intercambio térmico a través de la tubería 47 y retornando como condensado a través de la tubería 48.

10 El producto concentrado de uranio acuoso contiene - una muy pequeña cantidad de los productos de fisión y muy poco ácido nítrico, evitando por ello los problemas de congelación presentes cuando el producto de uranio contiene ácido nítrico y los problemas causados por ácido nítrico, cuando se convierte el nitrato de uranilo en trióxido de uranio.

15 El siguiente ejemplo detalla una ejecución preferida del procedimiento de este invento. Partes y tantos por ciento lo son de peso, a no ser que se indique de otro modo.

#### Ejemplo

20 Se reúne un sistema dispuesto como se observa en la figura. Cada una de las columnas consiste en un casco de acero inoxidable de 8 pulgadas de diámetro interior con una pluralidad de placas de criba espaciadas, teniendo alrededor de 23% de aberturas, espaciadas a lo largo de la columna. Una columna de aire está conectada a cada una de las columnas de extracción de disolvente de fases múltiples y se impulsa alimentación a cada una de modo que se mantenga una acción pulsante de vaivén en cada columna, mejorando la eficacia de extracción. La columna de reflujo incluye 9 fases de plutonio en la sec-

25

30





300454

1  
5  
10  
15  
20  
25  
30

men de alrededor de 200 litros por hora. Una primera corriente de producto se separa cerca de la parte superior de la primera columna a un régimen de alrededor de 640 litros por hora. Esta corriente es parcialmente descontaminada y contiene alrededor de 78 gramos por litro de uranio, alrededor de 0,47 gramos por litro de plutonio y alrededor de 0,03 gramos por litro de neptunio en n-dodecano. La actividad de Zr-95, Nb-95 y Ru-103 y -106 se reduce a alrededor de  $5.6 \times 10^{-5}$ ,  $1.06 \times 10^{-4}$  y  $9.7 \times 10^{-4}$  Curies por gramo de uranio, respectivamente. Esta corriente incluye alrededor de 30 por ciento de volumen de tributil fosfato y una pequeña cantidad de ácido nítrico.

Una corriente de desperdicio sale del fondo de la primera columna a un régimen de alrededor de 400 litros por hora. Esta corriente es esencialmente una solución de ácido nítrico acuoso 2.8 molar conteniendo productos de fisión y menos de alrededor de 0.01 gramos por litro de uranio, menos de alrededor de 0.001 gramos por litro de plutonio y menos de alrededor de 0.01 gramos por litro de neptunio. Esta corriente es tratada para separar el ácido nítrico para un nuevo ciclo, para concentrar el material de desperdicio y se envía eventualmente a una instalación para disponer del desperdicio.

La primera corriente de producto desde la primera columna entra en la columna de reflujo y pasa en contracorriente a la corriente de reflujo. La corriente de reflujo contiene suficiente uranio para elevar el contenido de uranio del disolvente a más de 90% de saturación. A esta saturación, las proporciones de distribución de plutonio, neptunio, ácido nítrico

300454



- 17 -

1 y productos de fisión, tales como circonio, niobio y rutenio,  
son muy bajas, de modo que estos componentes son barridos de  
la corriente, que transporta uranio, cuando pasa a través de  
5 la sección de barrido. El flujo de la corriente de reflujo se  
controla y ajusta para mantener este grado de saturación. Tí-  
picamente, el caudal de reflujo es de alrededor de 220 litros  
por hora de una solución acuosa conteniendo alrededor de 172  
10 gramos por litro de uranio, menos de  $10^{-5}$  gramos por litro de  
plutonio, menos de  $10^{-6}$  gramos por litro de neptunio y menos  
de 0,01 molar en ácido nítrico. También, la actividad de Zr-95,  
Nb-95 y Ru-103 y -106 son solamente de alrededor de  $1.2 \times 10^{-10}$ ,  
8.0  $\times 10^{-11}$  y  $8.1 \times 10^{-11}$  Curies por gramo de uranio, respecti-  
vamente, en la corriente de reflujo.

15 Una corriente despojadora, conteniendo alrededor de  
30 por ciento de volumen de tributíl-fosfato en n-dodecano, se  
introduce cerca del fondo de la columna de reflujo a un régi-  
men de alrededor de 156 litros por hora.

20 Una pequeña corriente de ácido nítrico se introduce  
en la columna de reflujo para mantener la acidez de la fase -  
acuosa a alrededor de 1,0 molar. La acidez en la columna se -  
controla y el flujo de esta corriente se ajusta correspondien-  
temente. Típicamente, la corriente de ácido es de alrededor de  
11,6 litros por hora de ácido nítrico 10 molar. A una acidez  
25 de alrededor de 1,0 molar, el uranio se extrae en la corriente  
despojadora orgánica, mientras que plutonio-neptunio, ácido ní-  
trico y productos de fisión no son extraídos.

30 Una corriente de producto acuoso de plutonio-neptu-

17 JUN 1969

308454

1

nio abandona el fondo de la columna de reflujo a un régimen de  
alrededor de 232 litros por hora. Esta corriente contiene menos  
de alrededor de 0,01 gramos por litro de uranio, alrededor de  
1,3 gramos por litro de plutonio y alrededor de 0,22 gramos -  
por litro de neptunio. Esta corriente es de alrededor de 1,0  
molar en ácido nítrico. La actividad de esta corriente en Zr-  
95, Nb-95 y Ru-103 y -106 es de alrededor de  $3,4 \times 10^{-3}$ ,  $6.4$   
 $\times 10^{-3}$ , y  $5.8 \times 10^{-2}$  Curies por gramo de plutonio, respectiva-  
mente. Esta corriente puede dirigirse típicamente a intercam-  
bio de aniones o a extracción adicional de disolvente para ul-  
terior descontaminación y partición de plutonio-neptunio, si  
se desea.

5

10

15

20

La corriente de producto de reflujo abandona la co-  
lumna de reflujo a un régimen de alrededor de 796 litro por -  
hora. Esta corriente contiene alrededor de 110 gramos por li-  
tro de uranio, menos de alrededor de  $10^{-6}$  gramos por litro de  
plutonio y menos de alrededor de  $10^{-7}$  gramos por litro de nep-  
tunio. La actividad de Zr-95, Nb-95 y Ru-103 y -106 en esta  
corriente se ha reducido a alrededor de  $9.0 \times 10^{-7}$ ,  $5.0 \times 10^{-7}$   
y  $4.0 \times 10^{-5}$  Curies por gramo de uranio. La corriente contie-  
ne alrededor de 30 por ciento de volumen de tributíl fosfato  
en el soporte de n-dodecano.

25

30

La corriente de producto de reflujo entra en una -  
tercera columna de extracción de disolvente de fases múlti-  
ples, donde pasa en contracorriente a una corriente despoja-  
dora acuosa. La corriente despojadora entra a un régimen de  
alrededor de 720 litros por hora. Esta corriente se mantiene

300454

17



1  
5  
10  
15  
20  
25  
30

a una molaridad de ácido nítrico de alrededor de 0,01. La tercera columna se mantiene a una temperatura de alrededor de 50-60°C para permitir una concentración de uranio lo mayor posible en la corriente acuosa, que abandona la columna.

El disolvente orgánico, despojado de uranio, abandona la columna para nuevo ciclo.

El producto de uranio acuoso, abandonando la columna a un régimen de alrededor de 720 litros por hora, contiene alrededor de 121,5 gramos por litro de uranio, menos de alrededor de  $10^{-6}$  gramos por litro de plutonio y menos de alrededor de  $10^{-7}$  gramos por litro de neptunio.

Alrededor de 180 litros por hora de la corriente de producto de uranio se devuelve al ciclo como parte de la corriente de reflujo. El resto (alrededor de 540 litros por hora) de esta corriente, pasa a un re-hervidor de sifón, donde se evapora el agua, concentrando la corriente a alrededor de 400 gramos de uranio por litro de agua.

La corriente de producto de uranio concentrado se divide, con alrededor de 40 litros por hora, yendo a formar parte de la corriente de reflujo y yendo el resto, de alrededor de 125 litros por hora, al almacenaje del producto. El producto, ahora en la forma de una solución acuosa concentrada de nitrato de uranilo puede convertirse en combustible de óxido de uranio.

El producto contiene sustancialmente menos productos de fisión que los producidos por un solo ciclo de extracción-despojamiento. La actividad de Zr-95, Nb-95 y Ru-103 y -106 en

360454



17 JUN 1969

-20-

1 el producto es de alrededor de  $9,0 \times 10^{-7}$ ,  $5,0 \times 10^{-7}$  y  $4,0 \times 10^{-5}$  Curies por gramo de uranio, respectivamente, que se comparan favorablemente con la actividad de alrededor de  $4,0 \times 10^{-4}$ ,  
5  $5,0 \times 10^{-4}$  y  $4,04 \times 10^{-3}$  Curies por gramo de uranio, respectivamente, que podría esperarse de un simple ciclo de extracción-despojamiento como en el proceso Purex,

En adición, la concentración de uranio es menor de 0,01 gramos por litro en la corriente de producto de plutonio-neptunio, y el plutonio y neptunio en el producto concentrado  
10 de uranio es menor de alrededor de  $10^{-6}$  y  $10^{-7}$  gramos por litro, respectivamente.

Así, es aparente que el procedimiento de este invento es capaz de contaminación excepcional y excelente separación  
15 de uranio de otros valiosos componentes de combustible.

N O T A

=====

La presente patente de invención consta de las siguientes reivindicaciones:

20 1.- Procedimiento de recuperación de combustible nuclear irradiado, caracterizado por las operaciones de: disolver combustible irradiado en una solución acuosa de ácido nítrico; poner en contacto dicha solución acuosa de combustible con un disolvente orgánico comprendiendo tributil-fosfato y un  
25 disolvente de hidrocarburo inmiscible en agua para extraer uranio, plutonio y neptunio en dicho disolvente orgánico; hacer pasar la solución orgánica en contracorriente con una corriente acuosa de reflujo, conteniendo suficiente uranio para mantener dicha solución orgánica a por lo menos 90% de saturación

30



360454

1  
5  
10  
15  
20  
25  
30

de uranio, por lo que se barren de dicha solución orgánica, -  
 plutonio, neptunio y productos de fisión; hacer pasar dicha co-  
 rriente acuosa de reflujo después de dicho barrido, en contac-  
 to de contra-corriente con una corriente despojadora, compren-  
 diendo tributil-fosfato y un disolvente de hidrocarburo, inmisible  
 en agua, mientras se mantiene la acidez de dicha corriente  
 de reflujo a alrededor de 1 molar, por lo que se despoja -  
 uranio de dicha corriente de reflujo, y la corriente orgánica  
 soportadora de uranio resultante se convierte en parte de di-  
 cha solución orgánica; y poner en contacto la solución orgáni-  
 ca, conteniendo uranio resultante, con una corriente acuosa, -  
 por la que se despoja uranio desde dicha solución orgánica.

2.- Procedimiento según la reivindicación 1, carac-  
 terizado porque dicho disolvente orgánico comprende desde alre-  
 dedor de 25 a alrededor de 40 por ciento de volumen de tribu-  
 til fosfato en n-dodecano.

3.- Procedimiento según la reivindicación 1, carac-  
 terizado porque la operación de hacer pasar la solución acuosa  
 final, conteniendo uranio, a un evaporador para eliminar agua  
 y desde una corriente de producto concentrado de uranio.

4.- Procedimiento según la reivindicación 3, carac-  
 terizado porque por lo menos una porción de dicha corriente -  
 acuosa conteniendo uranio y de dicha corriente de producto con-  
 centrado de uranio se desvía para constituir dicha corriente  
 de reflujo.

5.- Procedimiento para separar uranio de una mezcla  
 comprendiendo uranio, plutonio, neptunio y productos de fisión

369454

17



- 22 -

1 según la reivindicación 1, caracterizado por las operaciones de:  
formar una primera solución acuosa de ácido nítrico de dicha -  
mezcla; constituir poniendo en contacto dicha primera solución  
5 acuosa con una primera corriente de disolvente orgánico compren-  
diendo tributil fosfato y un disolvente de hidrocarburo inmis-  
cible en agua para extraer uranio, plutonio y neptunio en la  
fase orgánica; introducir dicha primera corriente orgánica en  
una columna de reflujo entre una sección superior de barrido y  
una sección inferior de extracción; introducir una corriente  
10 de reflujo acuosa, conteniendo uranio, en contacto de contra-  
corriente con dicha primera solución orgánica en dicha sección  
de barrido para mantener la concentración de uranio en dicha  
primera solución orgánica en dicha sección de barrido por en-  
cima de alrededor de 90 por ciento de saturación, por lo que son  
15 barridos plutonio, neptunio y productos de fisión de dicha pri-  
mera solución orgánica y pasan hacia abajo con dicha corriente  
de reflujo; introduciendo una corriente de ácido nítrico den-  
tro de dicha columna de reflujo por encima de dicha sección de  
extracción para mantener la acidez en dicha sección de extrac-  
20 ción a alrededor de 1 molar; introducir una segunda corriente  
orgánica comprendiendo tributil fosfato y un disolvente de hi-  
drocarburo inmiscible en agua en dicha columna de reflujo de-  
bajo de dicha sección de extracción, por lo que se extrae ura-  
nio dentro de dicha segunda corriente orgánica cuando pasa ha-  
25 cia arriba en contra-corriente a dicha corriente de reflujo;  
y sacando una corriente de producto orgánico de reflujo por en-  
cima de dicha sección de barrido, que contiene uranio y está

30

301454

17



1  
5  
10  
15  
20  
25  
30

sustancialmente libre de plutonio, neptunio y productos de fisión.

6.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado porque dicho disolvente orgánico comprende desde alrededor de 25 hasta alrededor de 40 por ciento de volumen de tributil-fosfato en n-dodecano.

7.- Procedimiento según la reivindicación 5, caracterizado por la ulterior operación de poner en contacto dicha corriente de producto de reflujo con una segunda corriente acuosa, para barren uranio desde dicha corriente de producto de reflujo y formar una corriente acuosa de producto de uranio.

8.- Procedimiento según la reivindicación 7, caracterizado por la operación de hacer pasar la corriente acuosa final conteniendo uranio a un evaporador para eliminar agua y formar una corriente concentrada de producto de uranio.

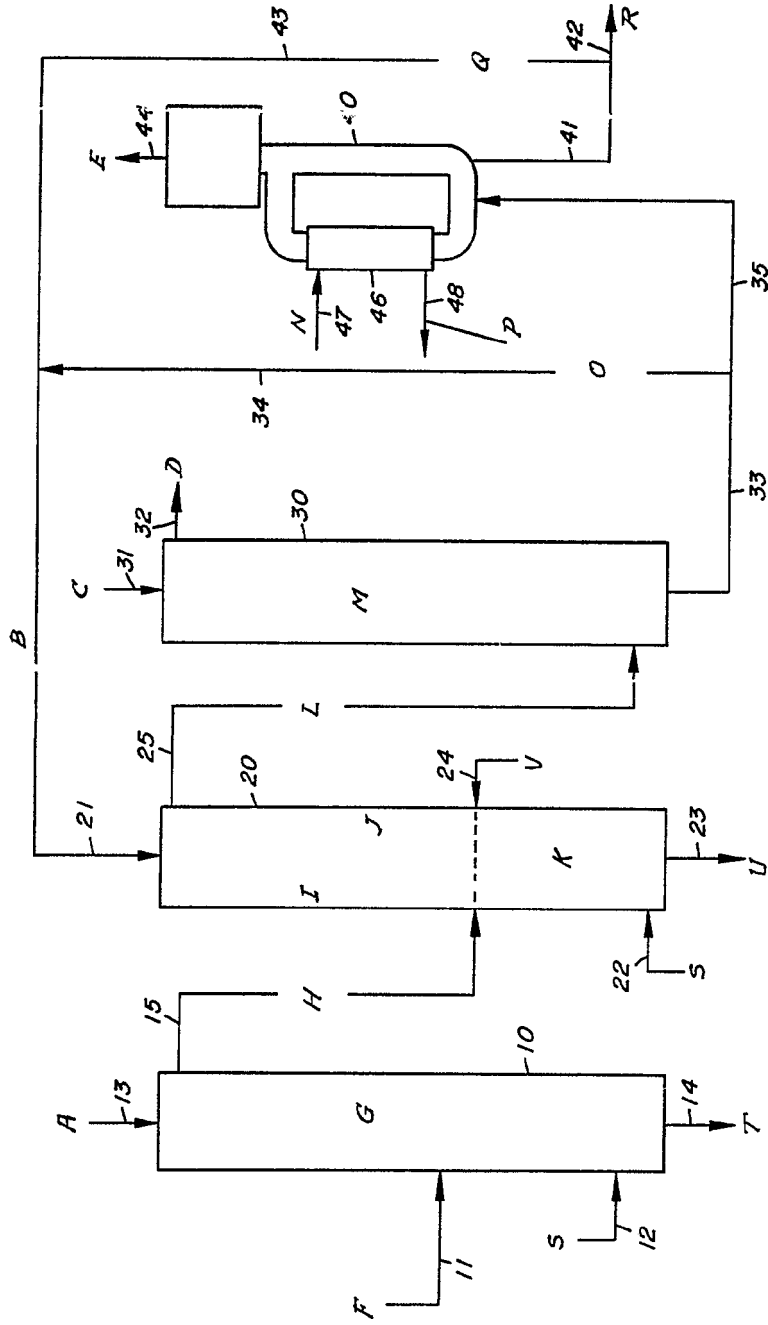
9.- Procedimiento según la reivindicación 8, caracterizado porque por lo menos una porción de dicha corriente acuosa conteniendo uranio y de dicha corriente concentrada de producto de uranio se desvía para constituir dicha corriente de reflujo.

10.- Procedimiento de recuperación de combustible nuclear irradiado.

Según se describe y reivindica en esta memoria descriptiva, y se ilustra en los planos adjuntos, constando de veintitres hojas mecanografiadas.

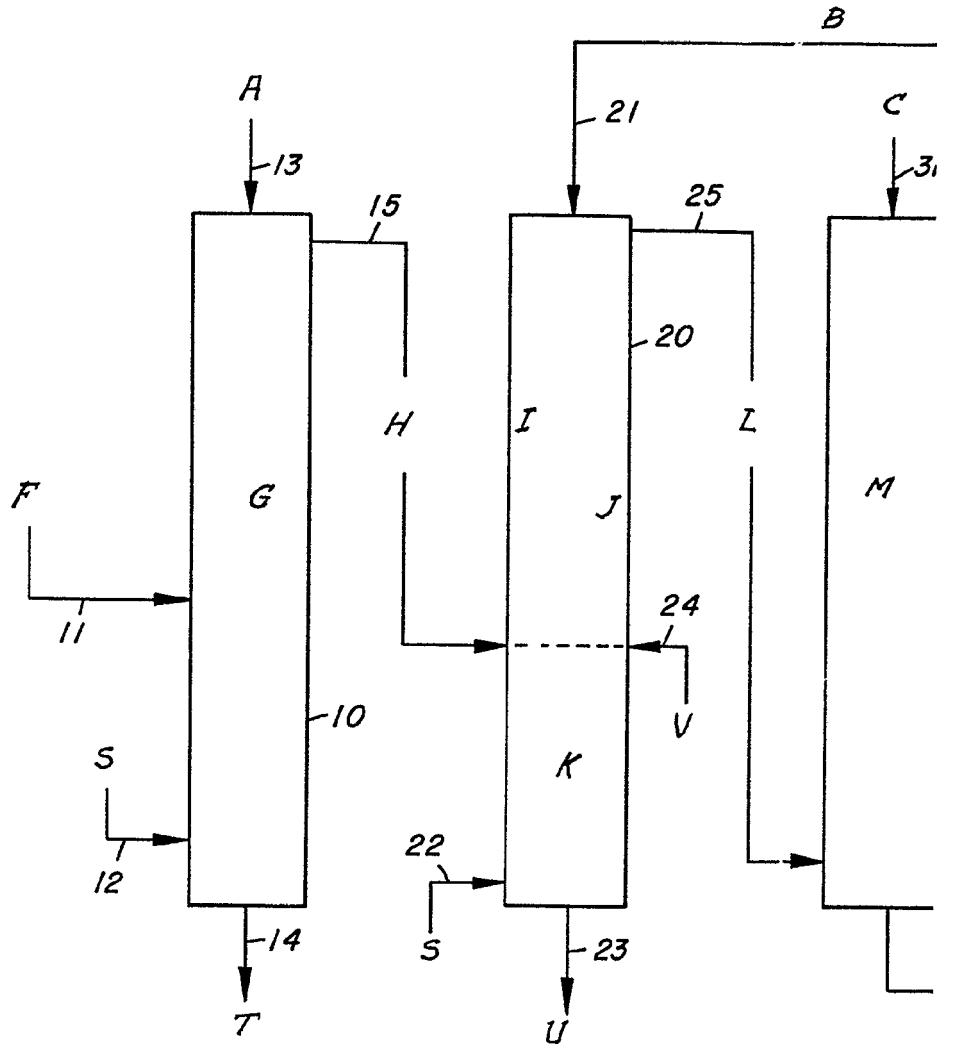
Madrid, a 17 JUN. 1969

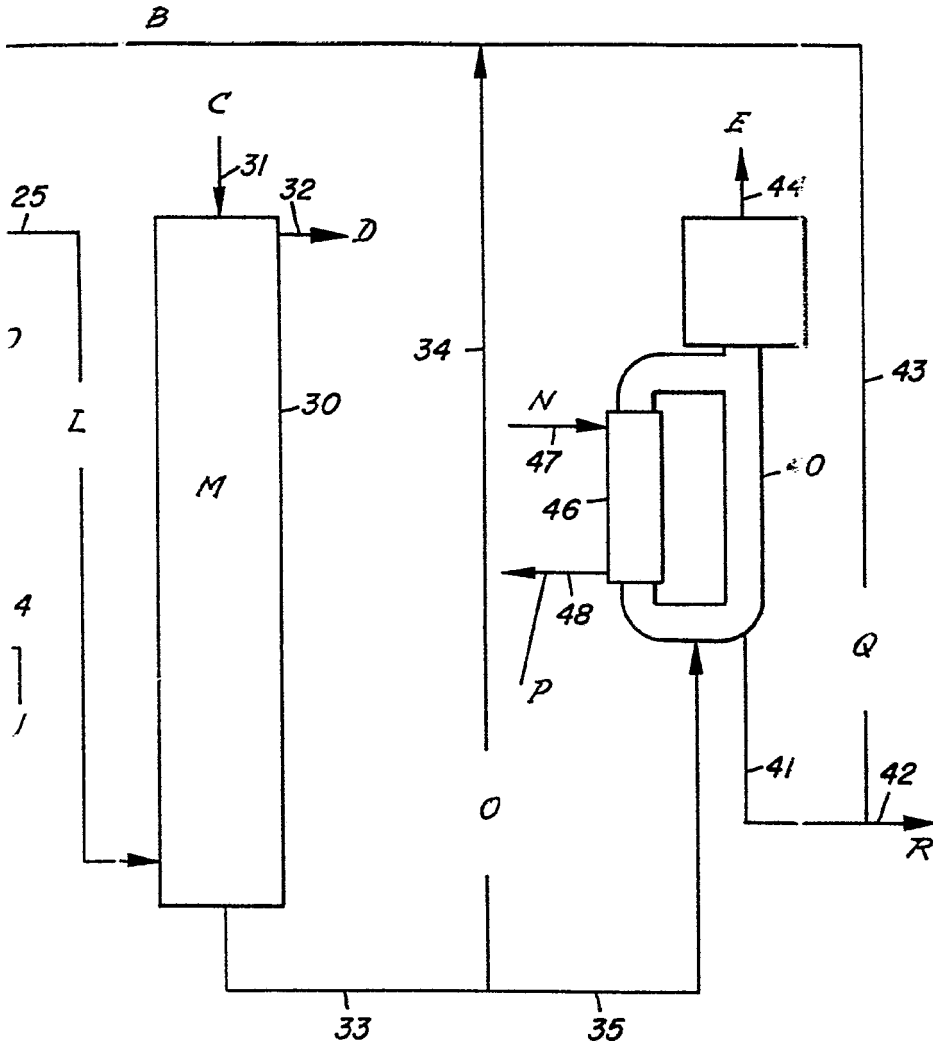
CARLOS ROEB



ESCALA VARIABLE  
 CARLOS ROFF

368 154





ESCALA VARIABLE  
CARLOS ROEB